

明 細 書

時系列変換パルス分光計測装置の時系列信号取得のための光路差補償機構

技術分野

- [0001] 本発明は、時系列変換パルス分光計測装置、特に、その時系列信号取得のための走査機構、及び、光学系の配列構造(光学配置)に関するものである。

背景技術

- [0002] 近年、極短幅パルスレーザー技術の実用化により、パルス状のコヒーレントな遠赤外領域(特に、テラヘルツ帯域)の電磁波の放射技術及び検出技術が飛躍的に進歩した。それによって、このパルス状の遠赤外領域の電磁波を用いた時系列変換パルス分光が可能となり、日本においても時系列変換パルス分光計測装置の実用化装置の開発が先駆的に進められた。
- [0003] 時系列変換パルス分光とは、パルス状の電磁波の時間に依存した電場強度を測定し、その時間に依存したデータ(時系列データ)をフーリエ変換することにより、そのパルスを形成する各周波数成分の電場強度と位相とを得る分光法である。この分光法の特徴の一つは、測定波長領域が従来計測が困難であった光と電波の境界領域であることが挙げられる。そのため、この分光法により新規材料の性質や新しい現象の解明が期待されている。また、従来の分光法では電磁波の電場強度しか得られなかったが、この時系列変換パルス分光計測法では、電磁波の電場強度の時間変化を直接測定することから、電磁波の電場強度(振幅)だけでなく、その位相をも得ることができるというユニークな特徴を持っている。従って、試料がない場合と比較することによって、位相シフトスペクトルを得ることができる。位相シフトは波数ベクトルに比例することから、この分光法を用いて試料中の分散関係を決定することができ、この分散関係から誘電体材料の誘電率を知得することも可能となる(特開2002-277394号公報参照)。
- [0004] 図1に、従来の時系列変換パルス分光計測装置の一例を示す。
- [0005] 符号1はフェムト秒レーザーを放射する光源である。光源1から放射されたフェムト秒

レーザー光L1は、ビームスプリッタ(分割手段)2で分割される。一方のフェムト秒レーザーは、励起用パルスレーザー光(ポンプパルス光)L2としてパルス光放射手段5に照射される。このとき、励起用パルスレーザー光L2は光チョッパ3により変調された後、対物レンズ4によって集光される。このパルス光放射手段5は例えば光伝導素子であり、励起用パルスレーザー光L2が照射されたときに瞬間的に電流が流れ、遠赤外電磁波パルスを放射する。この遠赤外電磁波パルスは、放物面鏡6,7により導光され測定試料8に照射される。その試料8の反射又は透過パルス電磁波(この例では透過パルス電磁波)は、放物面鏡9,10により検出手段12へ導光される。

[0006] ビームスプリッタ2で分割されたもう一方のレーザー光は、検出用パルスレーザー光(サンプリングパルス光)L3として検出手段12へ導光される。この検出手段12も例えば光伝導素子であり、検出用パルスレーザー光L3が照射されて、その瞬間だけ導電性となるので、その瞬間に到達した試料8からの反射又は透過パルス電磁波の電場強度を電流として検出することができる。試料8からの反射又は透過パルス電磁波の電場強度の時系列信号は、光学的遅延手段13(又は14)を用いて、励起用パルスレーザー光L2に対して検出用パルスレーザー光L3に所定の時間間隔づつ遅延時間差を付与することにより得ることができる。この例では、時系列信号測定用の光学的遅延手段13(又は14)の他に、時間原点調整用の光学的遅延手段14(又は13)も備えている。

[0007] 試料8の反射又は透過パルス電磁波の電場強度の各時間分解データは、信号処理手段によって処理される。すなわち、ロックインアンプ16を介してコンピュータ17に伝送され、順次、時系列データとして記憶され、一連の時系列データを、該コンピュータ17でフーリエ変換処理して振動数(周波数)空間に変換することにより、試料8の反射又は透過パルス電磁波の電場強度の振幅及び位相の分光スペクトルが得られる。

[0008] 特許文献1:特開2003-131137号公報
特許文献2:特開2003-121355号公報
特許文献3:特開2003-83888号公報
特許文献4:特開2003-75251号公報

特許文献5:特開2003-14620号公報

特許文献6:特開2002-277393号公報

特許文献7:特開2002-277394号公報

特許文献8:特開2002-257629号公報

特許文献9:特開2002-243416号公報

特許文献10:特開2002-98634号公報

特許文献11:特開2001-141567号公報

特許文献12:特開2001-66375号公報

特許文献13:特開2001-21503号公報

特許文献14:特開2001-275103号公報

非特許文献1:Q. Wu and X. -C. Zhang, Appl. Phys.Lett. 67 (1995) 3523)

非特許文献2:M. Tani, S. Matsuura, K.. Sakai, and S. Nakashima, Appl.
Opt.36(1997)7853

非特許文献3:阪井清美:分光研究、50(2001)261

非特許文献4:小島誠治、西澤誠治、武田三男:分光研究、52(2003)69

発明の開示

[0009] 以上のように、時系列変換パルス分光計測装置では、従来の分光装置では困難であった遠赤外波長域を分光測定帯域に含むに留まらず、その測定スペクトルに強度分散のみならず位相分散を独立に計測することができる。さらに、ピコ秒領域の過渡現象を実時間で追跡する時間分解分光測定も可能である。このような特徴を備えているために、時系列変換パルス分光計測装置で測定でき又は測定したい試料の種類や状態(固体、液体、気体等)等は多岐にわたる。しかしながら、このような多様な試料やその状態等の時系列変換分光計測を実施するためには、それらに応じて異なる光学系又は光学配置が必要となり、使用者に多大な負担をかけると共に試料交換後測定開始までの準備等に長時間を要するという問題があった。

[0010] 従って、本発明は、上記事情に鑑みてなされたもので、多様な試料やその状態等の時系列変換パルス分光計測を容易に短時間に行うことができる時系列変換パルス分光計測装置を提供することを目的とする。

[0011] 上記目的を達成するための本発明は、以下の構成を採用した。

本発明の時系列変換パルス分光計測装置は、パルスレーザー光源と、該パルスレーザー光源からのパルスレーザー光を励起用パルスレーザー光と検出用パルスレーザー光とに分割する分割手段と、前記励起用パルスレーザーの照射により遠赤外波長域の波長を含むパルス光を放射するパルス光放射手段と、該パルス光放射手段からのパルス光が照射された試料からの反射又は透過パルス光の電界強度の時系列信号を検出する検出手段と、試料を保持する試料保持部と、パルス光放射手段側からのパルス光を試料へ導光すると共に、該照射によって試料から反射又は透過したパルス光を検出手段側へ導光する試料部入出射光学系と、を備えた時系列変換パルス分光計測装置において、前記分割手段から前記パルス光放射手段までの入射側光路及び/又は前記分割手段から前記検出手段までの検出側光路に配置された少なくとも一の測光域設定用の光路長変更手段と、前記分割手段から前記パルス光放射手段までの入射側光路及び/又は前記分割手段から前記検出手段までの検出側光路に配置された少なくとも一の前記時系列信号測定用の光学的遅延手段と、を備えたことを特徴とする。

[0012] ここで、「試料部入出射光学系」とは、試料の種類や状態の変更に際して、光学系の交換・調整及び/又は光学配置の変更・調整が必要な試料(又は試料保持部)前後の光学系を含む光学系であって、前記パルス光放射手段と前記検出手段との間に配置した光学系をいう。

[0013] 「測光域設定用の光路長変更手段」とは、例えば試料の種類や状態の変更に伴う光学系の交換及び/又は光学配置の変更により、試料部入出射光学系の光路長が変化した場合に、その光路長の変化を補って試料からの反射又は透過パルス電磁波の電場強度の時系列信号の測定開始位置を設定するものであって、特に、光学系の交換に伴う大幅な光路長の変化に対しても、例えば反射器の走査だけでその大幅な光路長の変化を補償することができる構成を備えたものをいう。

[0014] 前記光路長変更手段による光路長の変更は、連続的に変更できる構成であっても、不連続に変更できる構成であってもよい。すなわち、例えば、光路に配置された反射器を走査することにより連続的に光路長を変更する構成であったり、又は、一の試

料用に測光域が設定されていた光路を反射ミラーにより光路を切り換えて他の試料用に測光域が設定されている光路に変更する構成であってもよい。

- [0015] 「時系列信号測定用の光学的遅延手段」は、各光学的遅延手段は従来の時系列信号測定用の光学的遅延手段(図1における符合13又は14)と同様の機能を有するものであるが、光学的遅延手段を複数備えた場合には、光学的遅延手段の数の分だけより長い時間にわたる時系列信号の測定を可能にする構成である点で従来の光学的遅延手段と異なるものである。
- [0016] 「測光域設定用の光学長変更手段」及び「時系列信号測定用の光学的遅延手段」は、並列配置、直列配置を問わず、種々の配置が可能であることは言うまでもない。
- [0017] 本発明によれば、試料部入出射光学系の光路長が変化した場合に、その光路長の変化を補って試料からの反射又は透過パルス電磁波の電場強度の時系列信号の測定開始位置を設定することができるという効果を奏する。特に、光学系の交換に伴う大幅な光路長の変化に対してもその測定域設定用の光路長変更手段を用いてその大幅な光路長の変化を補償することができるという効果を奏する。また、測光域を自在に設定することができるという効果を奏する。時系列信号測定用の光学的遅延手段を複数備えた場合には、光学的遅延手段の数の分だけより長い時間にわたる時系列信号の測定が可能であるという効果を奏する。
- [0018] また、本発明の時系列変換パルス分光計測装置は、さらに、前記測光域設定用の光路長変更手段が可動型の反射器とされている。
- [0019] 「測光域設定用の可動型の反射器」は、典型的には走査によって光路長を変更できるタイプの反射器であるが、光学配置の調整に伴って必要となる時間原点を調整するための従来の反射器(図1における符合13又は14)とは全く技術的思想が異なるものである。すなわち、具体的な構成の差異についていうと、従来の時間原点調整用の反射器は、測定の際に行われる光学調整においてずれた時間原点を調整するためのものであり、反射器の走査域は短くて構わないため、1個備えていれば十分であった。装置によっては、「時系列信号測定用の光学的遅延手段」に時間原点調整の機能をも担わせることによって、独立に、時間原点調整用の反射器を備えない場合もあり、その意味では、時間原点調整用の反射器は必須の構成要素ではなかった。こ

れに対して、本発明の測光域設定用の可動型の反射器は本発明の必須の構成要素であり、大幅な光路長の変更さえも補償することを可能とするために、一又は二以上の測光域設定用の可動型の反射器を合算した走査域は、時間原点調整用の反射器と比べて顕著に広い構成となっている。そして、より多数の反射器を備えることにより、走査域をさらに広げることをも可能とする構成である。従って、本発明の測光域設定用の可動型の反射器は、走査可能な反射器に対して従来とは全く異なる利用方法を見出し、光路長の大きな変化が避けられない多岐にわたる各種試料に対しても測光域設定用の反射器の走査だけで容易に測定を可能としたところに意義があると言える。

[0020] さらに、「測光域設定用の可動型の反射器」は、サイズ上の制限から一の反射器の走査距離を長くとれない場合に、反射器を複数平行に配置する等により、その反射器の数の分だけより大きな光路長を確保することができる構成である。

なお、「測光域設定用の可動型の反射器」は、時系列信号の測定開始位置の設定に限らず、時間原点調整用にも用いることができることは言うまでもないし、光路長の変更を要する様々な測光域の設定に活用できる。

[0021] 「測定域設定用の可動型の反射器」としては、例えば、コーナーキューブミラー等の反射鏡であるが、これに限定されない。

[0022] 本発明によれば、光路長を連続的に変更することができるという効果を奏する。

[0023] 本発明の時系列変換パルス分光計側窓値装置は、さらに、前記測定域設定用の光路長変更手段は可動型又は固定型の反射器であり、該反射器のいずれかは、該反射器へのパルス光の入射側に該反射器へのパルス光の通過又は阻止を行うゲート手段を備え、前記通過又は阻止の切り換えによって、一又は二以上の前記反射器を経由した光路を付加して光路長を延長すること、及び/又は、一又は二以上の前記反射器をスキップして光路長を短縮することを可能とすることを特徴とする。

[0024] 前記ゲート手段は、例えば、反射ミラーであり、この場合、この反射ミラーを光路へ挿脱することによりパルス光の光路を切り換えて光路長を変更するものである。すなわち、反射ミラーの挿脱によって、パルス光が所定の反射器へ入射し又は阻止されて、その反射器を経由した光路を付加して光路長を延長したり、又は、その反射器を

スキップして光路長を短縮することが可能となる。

[0025] 前記ゲート手段は空間的に移動しないで、パルス光の通過及び阻止を行う構成のものであってもよい。

[0026] 前記ゲート手段の通過又は阻止の切り換えは、自動・手動のいずれでもよいし、光路長の変更は複数のゲート手段によって行ってもよい。

[0027] 本発明によれば、反射器を空間的に移動しないで光路長を変更することができるという効果を奏する。すなわち、固定型の反射器だけでも光路長の変更ができるので、低価格で装置を製造できるという効果を奏する。複数の反射器の中から、使用する反射器を選択することが可能となり、測定に応じた自在の光路設定が可能となるという効果を奏する。従って、試料の交換毎に限らず、同じ試料について測定毎に、使用する反射器を選択して測定することも可能となるという効果を奏する。また、例えば、複数の反射器の中の一又は二以上の反射器に不具合が発生した場合には、その反射器を回避して光路を設定することも可能となるという効果を奏する。また、複数の反射器に係る光学系の光学配置について、より多様な配置が可能となるという効果を奏する。

[0028] また、本発明の時系列変換パルス分光計測装置はさらに、少なくとも一の前記ゲート手段の通過又は阻止が、該ゲート手段の並進移動による光路への挿脱によって行われることを特徴とする。

[0029] 前記ゲート手段は、前記反射器と共に並進移動する構成であってもよい。

[0030] また本発明の時系列変換パルス分光計測装置は、さらに、少なくとも一の前記ゲート手段の通過又は阻止は、該ゲート手段の回動による光路への挿脱によって行われることを特徴とする。

[0031] ここで、「回動」とは、ゲート手段の回転運動によって光路の切り換え操作が可能な全ての場合を含む。

[0032] また、本発明の時系列変換パルス分光計測装置はさらに、前記光路長変更手段及び/又は前記光学的遅延手段を自動で走査する駆動装置と、該駆動装置を自動的に制御するコンピュータ制御装置とを備えたことを特徴とする。

[0033] ここで、「駆動装置」としては、例えば、ステッピングモータ等の通常の走査用の駆

動装置を用いることができるが、これに限定されない。

[0034] 本発明によれば、光路長変更手段及び/又は光学的遅延手段を自動で走査することができ、その走査をコンピュータで自動に制御できるという効果を奏する。

[0035] また、本発明の時系列変換パルス分光計測装置は、さらに、前記試料保持部と前記試料部入出射光学系とは前記装置に着脱交換可能な付属光学ユニット内に備えられていることを特徴とする。

[0036] 前記付属光学ユニットは、試料毎に最適化設計された試料部入出射光学系を備えた専用特化されているのが好ましい。

[0037] 尚、この時系列変換パルス分光計測装置では、付属光学ユニットが装備される装置上の空間の寸法は、前記測光域設定用の走査可能な反射器によって光路長の変化の補正が可能となる範囲内で定められる。従って、例えば、空間の寸法は、幅150mm以上250mm以下、奥行き180mm以上、高さ150mm以上である。

[0038] 本発明によれば、付属光学ユニットの交換に伴う大幅な光路長の変化は、前記測光域設定用の光路長変更手段によって補償することができるので、測定開始までの準備時間が短縮できるという効果を奏する。また、試料毎に最適化設計された試料部入出射光学系を備えた専用特化の付属光学ユニットを用いることにより、付属光学ユニットの交換の際の試料部入出射光学系の調整が不要となるという効果を奏する。

[0039] また、本発明の時系列変換パルス分光計測装置は、さらに、前記付属光学ユニットに対して光学的整合を有するように光学設計がなされていることを特徴とする。

[0040] ここで、「光学的整合を有する」とは、FOV(Field of view)の値が一致することを意味する。

[0041] 本発明によれば、付属光学ユニットの交換によっても、付属光学ユニットと装置との接続部分での光の損失を防止することができるという効果を奏する。

[0042] また、本発明は、パルスレーザー光源と、該パルスレーザー光源からのパルスレーザー光を励起用パルスレーザー光と検出用パルスレーザー光とに分割する分割手段と、前記励起用パルスレーザーの照射により遠赤外波長域の波長を含むパルス光を放射するパルス光放射手段と、該パルス光放射手段からのパルス光が照射された試料からの反射又は透過パルス光の電界強度の時系列信号を検出する検出手段と

、試料を保持する試料保持部と、パルス光放射手段側からのパルス光を試料へ導光すると共に、該照射によって試料から反射又は透過したパルス光を検出手段側へ導光する試料部入出射光学系と、を備えた時系列変換パルス分光計測装置において、前記パルス光放射手段から前記試料部入出射光学系にかけて、および／または、前記検出手段から前記試料部入出射光学系にかけて、一又は複数の平面鏡および一又は複数の非球面鏡が、この順番で配置されていることを特徴とする。

[0043] パルス光放射手段と試料部入出射光学系との間の入射側光路に配置された非球面鏡は、試料に向けてパルス光を集光する。一方、平面鏡は、パルス光放射手段と非球面鏡との間に配置され、パルス光放射手段から放射されたパルス光を折り返す。これにより、パルス光放射手段と非球面鏡との光路長を長くとることができる。この光路長を長くとることにより、非球面鏡によって集光される焦点面積を可及的に小さくすることができ、ひいては測定対象となる試料の空間分解能を向上させることができる。

また、平面鏡によりパルス光を折り返すこととしているので、光路長を長くとりつつも、装置を極めてコンパクトに構成することができる。

また、パルス光放射手段と非球面鏡との光路長を長くとることができるので、所望の焦点面積を維持しながら非球面鏡と試料との間の距離を大きくとることができる。これにより、試料周りのスペース、すなわち試料部入出射光学系および試料保持部のスペースが十分に確保されるので、分析作業の自由度を増大させることができる。

[0044] 検出手段と試料部入出射光学系との間の検出側光路についても上記入射側光路と同様に、非球面鏡と検出手段との間に平面鏡を配置して光路長を長くとる構成としたので、非球面鏡によって集光される光束の焦点面積を可及的に小さくすることができ、ひいては測定対象となる試料の空間分解能を向上させることができる。また、入射側光路と同様に、装置をコンパクトに構成でき、試料周りのスペースを十分に確保できる。

図面の簡単な説明

[0045] [図1]従来の時系列変換パルス分光装置の概略構成図である。

[図2]本発明の時系列変換パルス分光装置の一実施形態の概略構成図である。

[図3](a)本発明の時系列変換パルス分光装置の時系列信号取得のための光路差補

償機構の一実施形態の概略構成図である。(b)(a)で示した構成を並列に配置した構成を示す図である。

[図4]本発明の時系列変換パルス分光装置時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成図である。

[図5](a)本発明の時系列変換パルス分光装置時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成図である。(b)(a)の一部の拡大図である。

[図6]本発明の時系列変換パルス分光装置の時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成図である。

[図7](a)本発明の時系列変換パルス分光装置の時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成図である。(b)(a)のゲート手段と反射器を移動した場合を示す図である。

符号の説明

- [0046]
- 1 パルスレーザー光源
 - 2 分割手段
 - 8 試料
 - 12 検出手段
 - 20 時系列変換パルス分光計測装置
 - 26,27,28,29 非球面鏡
 - 30 付属光学ユニット
 - 31 試料保持部
 - 32,33,34 試料部入射光学系
 - 35,36,37 試料部出射光学系
 - 41,42 光路長変更手段又は光学的遅延手段
 - 51,52,53 反射器
 - 61,62,63,64 反射器
 - 71,73,75 ゲート手段
 - 81,82,83 反射器
 - 91,93 ゲート手段

101,102 反射器

112 ゲート手段

115 反射器

発明を実施するための最良の形態

[0047] 図2に、本発明に係る時系列変換パルス分光計測装置及びその時系列信号取得のための光路差補償機構の一実施形態の概略構成を示す。図1と同様な構成要素については同じ符号を用いてその説明を省略する。

[0048] この時系列変換パルス分光計測装置20は、パルスレーザー光源1を備えている。このパルスレーザー光源1からのパルスレーザー光L1は、励起用パルスレーザー光L2と検出用パルスレーザー光L3とに分割する分割手段2へと導かれる。

時系列変換パルス分光計測装置20は、さらに、励起用パルスレーザーL2の照射により遠赤外波長域の波長を含むパルス光を放射するパルス光放射手段5と、このパルス光放射手段5からのパルス光が照射された試料8からの反射パルス光の電界強度の時系列信号を検出する検出手段12と、を備えている。

パルス光放射手段5と検出手段12との間には、試料8を保持する試料保持部31と、パルス光放射手段側からのパルス光を試料へ導光する試料部入射光学系32,33,34と、この照射によって試料から反射したパルス光を検出手段12側へ導光する試料部出射光学系35,36,37と、が設けられている。

[0049] さらに、時系列変換パルス分光計測装置20は、少なくとも一の測光域設定用の光路長変更手段(図2の場合、コーナーキューブミラー)41と、少なくとも一の時系列信号測定用の光学的遅延手段42(図2の場合、コーナーキューブミラー)とを備えている。ここで、光路長変更手段41は、走査することができる可動型の反射器である。

また、測光域設定用の光路長変更手段41及び時系列信号測定用の光学的遅延手段42には自動で走査する駆動装置(図示せず)が備えられ、さらにこの駆動装置を自動的に制御するコンピュータ制御装置(図示せず)が備えられている。(但し、反射器41及び42は、前者が時系列信号測定用で後者が測光域設定用でも構わない。)

さらに、試料保持部31と試料部入出射光学系32,33,34,35,36,37とは、この時系列変換パルス分光計測装置に着脱交換可能な付属光学ユニット30内に備えられてい

る。

[0050] パルス光放射手段5と付属光学ユニット30との間の入射側光路には、光学要素として、楕円鏡(非球面鏡)26と平面鏡27とが設置されている。楕円鏡26は、パルス光放射手段5からのパルス光を集光する。平面鏡27は、パルス光放射手段5と楕円鏡26との間に配置されており、パルス光放射手段5からのパルス光を折り返す機能を果たす。なお、楕円鏡26及び平面鏡27は、本実施形態のように1つずつとしても良いが、複数を組み合わせて用いることもできる。

[0051] 検出手段12と付属光学ユニット30との間の検出側光路には、光学要素として、楕円鏡(非球面鏡)28と平面鏡29とが設置されている。楕円鏡28は、試料8からの反射パルス光を集光する。平面鏡29は、楕円鏡28と検出手段12との間に配置されており、楕円鏡28からの反射パルス光を折り返す機能を果たす。なお、楕円鏡28及び平面鏡29は、本実施形態のように1つずつとしても良いが、複数を組み合わせて用いることもできる。

[0052] 光学要素である楕円鏡26,平面鏡27,楕円鏡28,平面鏡29及び図示しない他の光学系は、この付属光学ユニット30に対して光学的整合を有するように光学設計がなされている。

本実施形態の場合、試料からの反射パルス光の電界強度の時系列信号を検出する構成となっている。もちろん、透過パルス光の電界強度の時系列信号を検出する構成としてもよい。

[0053] 概略以上のような構成を備えた本発明の時系列変換パルス分光計測装置において、試料測定の前準備は以下のように行われる。

まず、測定する試料8を付属光学ユニット30内の試料保持部31に取り付ける。次いで、付属光学ユニット30を時系列変換パルス分光計測装置20に装着する。次に、この付属光学ユニット30内の試料部入出射光学系32,33,34,35,36,37に固有の光路長に対する出力信号の時系列配置の原点を設定するために、図示しない駆動装置及びコンピュータ制御装置を作動して測光域設定用の反射器41を走査する。こうして、試料測定の前準備が完了する。

試料測定は、本発明の時系列変換パルス分光計測装置も図1で示した従来装置と

実質的に同様に作用する。

- [0054] すなわち、光源1から放射されたパルスレーザー光L1は、分割手段2によって励起用パルスレーザー光(ポンプパルス光)L2と検出用パルスレーザー光(サンプリングパルス光)L3とに分割される。

励起用パルスレーザー光L2はレンズ4を介してパルス光放射手段5に照射される。この照射によってパルス光放射手段5は遠赤外電磁波パルスを放射する。この遠赤外電磁波パルスは、平面鏡27によってその光路を折り返された後に、楕円鏡26へと導かれ、集光される。付属光学ユニット30内に導光された遠赤外電磁波パルスは、試料部入射光学系32,33,34を介して集光されて試料8に照射される。試料8の光学的情報を含んで試料8から反射された反射パルス電磁波は、試料部入射光学系35,36,37を介して付属光学ユニット30の外の楕円鏡28で反射された後に、平面鏡29で折り返され、さらに検出手段12へ導光される。

- [0055] 他方、分割手段2で分割された検出用パルスレーザー光L3は、検出手段12をその瞬間だけ導電性として、その瞬間に到達した試料8からの反射パルス電磁波の電場強度を電流として検出することを可能としている。ここで、反射器42によって、励起用パルスレーザー光L2に対して検出用パルスレーザー光L3に所定の時間間隔ずつ遅延時間差を付与することにより、試料8からの反射パルス電磁波の電場強度の時系列信号を得ることができる。

図示していないが、この時系列変換パルス分光計測装置は、時間原点の調整専用の反射器を備えてもよい。

- [0056] このように、本実施形態によれば、パルス光放射手段5と楕円鏡26との間に配置された平面鏡27により、パルス光放射手段5から放射されたパルス光が折り返されることになる。これにより、パルス光放射手段5と楕円鏡26との光路長を長くとることができ、楕円鏡26によって集光される光束の焦点面積を可及的に小さくすることができ、ひいては測定対象となる試料8の空間分解能を向上させることができる。

また、平面鏡27によりパルス光を折り返すこととしているので、光路長を長くとりつつも、装置を極めてコンパクトに構成することができる。

また、パルス光放射手段5と楕円鏡26との光路長を長くとることができるので、所望

の焦点面積を維持しながら楕円鏡26と試料8との間の距離を大きくとることができる。これにより、付属光学ユニット30を設置するスペースが十分に確保されるので、分析作業を容易にすることができる。

- [0057] 検出手段12と付属光学ユニット30との間の検出側光路も入射側光路と同様に、楕円鏡28と検出手段12との間に平面鏡29を配置して光路長を長くとり構成としたので、楕円鏡28によって集光される光束の焦点面積を可及的に小さくすることができ、ひいては測定対象となる試料8の空間分解能を向上させることができる。また、入射側光路と同様に、装置をコンパクトに構成でき、付属光学ユニット30を設置するスペースが十分に確保される。
- [0058] 図3(a)に、本発明の時系列変換パルス分光計測装置時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成を示す。
- [0059] この実施形態では、前記分割手段から前記パルス光放射手段までの入射側光路及び/又は前記分割手段から前記検出手段までの検出側光路において、複数の光路長変更手段及び/又は光学的遅延手段(図3の場合、反射器)が反射器に入射及び反射する光路を平行にして光路をずらした状態で対向配置されている。図の場合、反射器はコーナーキューブミラーである。この構成において、走査機構に入射したパルスレーザ光L2又はL3は、コーナーキューブミラー51,52,53、…に順に反射されて、走査機構の外へ導光されて、パルス光放射手段5又は検出手段12へ送られる。
- [0060] このような構成のため、1個の反射器の場合と比較して、反射器の数の分だけの光路長の変更が可能である。また、このような構成によって、反射器の走査方向にはスペースが十分はないが走査方向に直交する方向には十分スペースがある場合にも、大きな光路長の変更を可能とすることができる。この実施形態において、図3(b)のように、図3(a)のような構成の走査機構が入射側光路及び/又は検出側光路において並列に配置されてもよい。
- [0061] 図3(b)のように、図3(a)のような構成の光路長変更手段及び/又は光学的遅延手段が入射側光路及び/又は検出側光路において並列に配置されてもよい。
- [0062] 図4に、本発明の時系列変換パルス分光計測装置の時系列信号取得のための光

路差補償機構の他の実施形態の概略構成を示す。

- [0063] この実施形態では、測光域設定用の反射器(図の場合、コーナーキューブミラー)及び時系列信号測定用の反射器(図の場合、コーナーキューブミラー)のそれぞれが、2個ずつ(61及び62と63及び64)並置されて同時に走査するように構成され、測光域設定用の反射器61,62と時系列信号測定用の反射器63,64とが光路をずらした状態で対向配置されている。この構成において、分割手段2で分割された励起用パルスレーザー光L2又は検出用パルスレーザー光L3は、ミラー65で反射された後、走査機構に入り、測光域設定用及び時系列信号測定用の反射器63,61,64及び62に順に反射されて走査機構の外へ導光され、さらに、ミラー66及び67で反射されてパルス光放射手段5又検出手段12へ送られる。
- [0064] このような構成であるため、1個のコーナーキューブミラーの場合と比較して、反射器の走査に対して2倍の光路長の変更が可能となるという特徴を有する。従って、迅速な測光域設定及び時系列信号測定用の設定が可能となるという効果を奏する。図4の構成を光路長変更手段、光学的遅延手段のいずれに用いてもよい。
- [0065] 図5(a)に、本発明の時系列変換パルス分光計測装置時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成を示す。
- [0066] 図5(a)の実施形態では、測定域設定用の光路長変更手段81,82,83,...は可動型又は固定型の反射器であり、この反射器のいずれかは、少なくともこの反射器へのパルス光の入射側に、この反射器へのパルス光の通過又は阻止を行うゲート手段71,73,75を備え、この通過又は阻止の切り換えによって、一又は二以上の反射器81,82,83,...を経由した光路を付加して光路長を延長すること、及び/又は、一又は二以上の反射器81,82,83,...をスキップして光路長を短縮することができる。また、図5の場合、ゲート手段は反射鏡であり、反射器81,82,83,...からの反射したパルス光を隣接する反射器側へ反射する反射鏡72,74,...を備えている。この実施形態では、少なくとも一の反射鏡(ゲート手段)の通過・阻止は反射鏡の回動によって反射鏡の光路への挿脱することによって行われる。図中で反射鏡の近傍に付した矢印及び反射鏡を示す実線及び点線は、反射鏡の通過・阻止の切り換えの様子を模式的に示したものである。

- [0067] この実施形態の作用について、図5(a)の一部を拡大した図5(b)を用いて説明する。例えば、切り換え前に、反射鏡71が光路中に挿入されており(実線)かつ反射鏡72(実線)が光路中から外されている場合には、レーザー光L4は反射鏡71で反射されてL41となりL5として進んでいく。この場合、反射器81がスキップされている。これに対して、反射鏡71,72を切り換えて点線のように反射鏡71が光路中から外されかつ反射鏡72が光路中へ挿入されている場合には、レーザー光L4はL42として反射器81で反射されてL43となりさらに反射されてL44となり、反射鏡72で反射されてL5として進んでいく。こうして、切り換えによって反射器81を経由した光路長が付加される。これに対して、この切り換えの順序を逆にすれば、逆に、反射器81を経由する光路がなくなり、光路長が短縮される。図5の構成を光路長変更手段、光学的遅延手段のいずれに用いてもよい。
- [0068] 図6に、本発明の時系列変換パルス分光計測装置の時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成を示す。
- [0069] この実施形態では、用途に応じて複数の反射器101,102,...が適切な位置に配備されており、ゲート手段91,93,...及び隣接した反射器へ送る反射鏡92,94,...によって光路長の変更する構成である。図6の場合、ゲート手段は反射鏡である。
- [0070] この実施形態において、ゲート手段91,93,...及び隣接した反射器へ送る反射鏡92,94,...が実線の位置に配置している場合、光路長変更手段に入射したパルス光は、まず、ゲート手段91で反射され、反射鏡92,ゲート手段93,及び反射鏡94の傍らを通り、反射鏡95で反射されて外部へ導光される。この場合、反射器101及び102を用いた試料の測定を行わない場合である。他方、ゲート手段91及び反射鏡92が点線の位置に切り換えることによって、パルス光は反射器101を用いた試料の測定(図では、反射測定)が可能となる。さらに、ゲート手段91及び反射鏡92を実線の位置に切り換え、さらに、ゲート手段93及び反射鏡94を点線の位置に切り換えることによって、反射器102を用いた試料の測定(図では、ガスセル測定)が可能となる。
- [0071] 図7(a)及び図7(b)に、時系列変換パルス分光計測装置の時系列信号取得のための光路差補償機構の他の実施形態の概略構成を示す。
- [0072] この実施形態では、少なくとも一のゲート手段112の通過又は阻止は、該ゲート手

段112の並進移動による光路への挿脱によって行われる。特に図7の場合、ゲート手段112と反射器115とは共に移動装置116の上に装備されている。さらに、反射器115から反射されたパルス光を反射鏡114へ反射して送る反射鏡113も移動装置116に装備されている。図の場合、ゲート手段112は反射鏡である。

- [0073] この場合、移動装置116が図7(a)の位置に配置しているときは、反射鏡111から反射されてきたパルス光は、ゲート手段112及び反射鏡113の傍らを通過して反射鏡114に反射されて外へ導光される。移動装置116が図7(a)の位置から図7(b)の位置に移動させると、ゲート手段112及び反射鏡113と反射器115とが共に並進移動して、反射器115を経由した光路が付加されて光路長が延長され、反射器115を用いた測定が可能となる。

請求の範囲

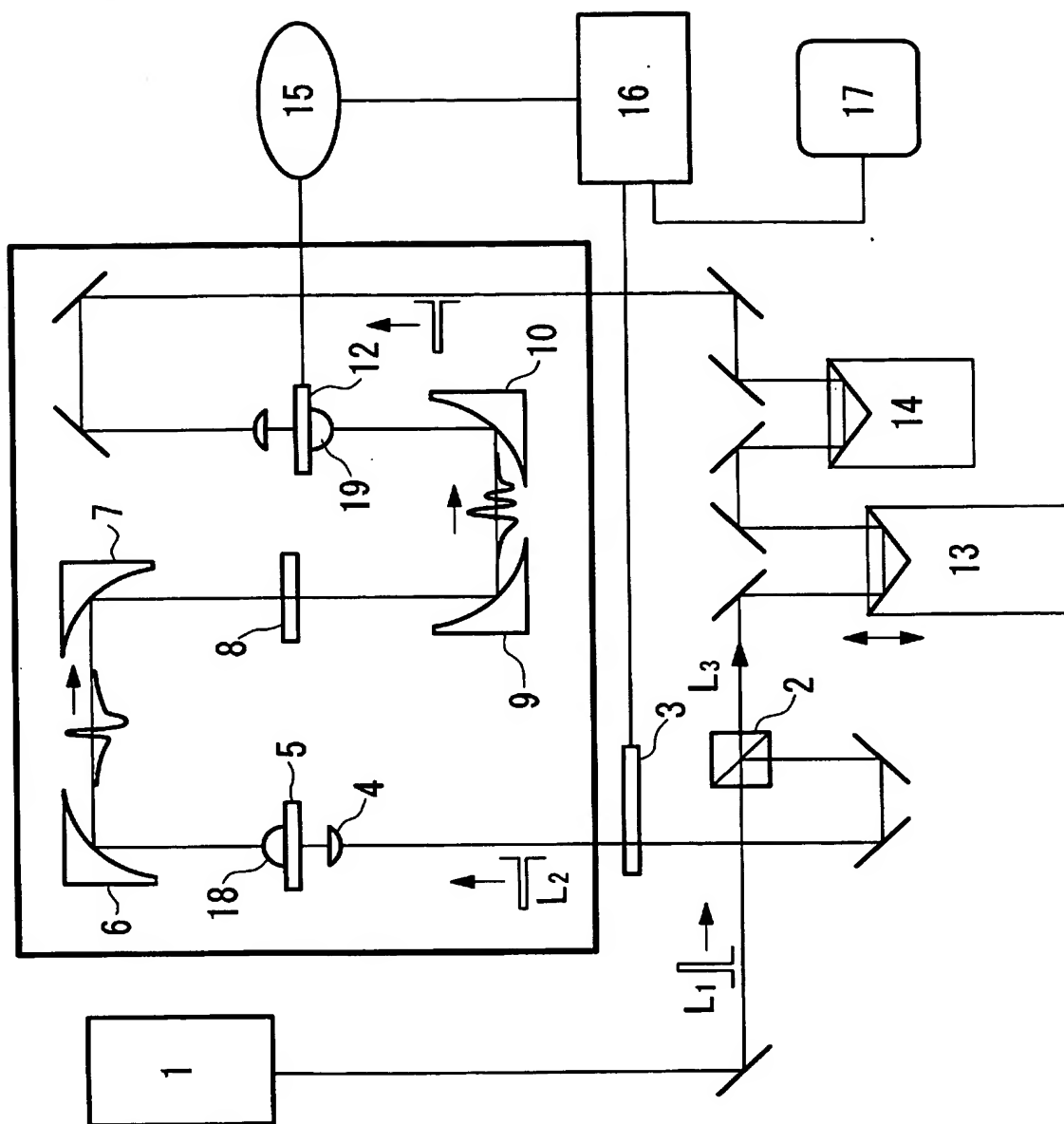
- [1] パルスレーザー光源と、
該パルスレーザー光源からのパルスレーザー光を励起用パルスレーザー光と検出用パルスレーザー光とに分割する分割手段と、
前記励起用パルスレーザーの照射により遠赤外波長域の波長を含むパルス光を放射するパルス光放射手段と、
該パルス光放射手段からのパルス光が照射された試料からの反射又は透過パルス光の電界強度の時系列信号を検出する検出手段と、
試料を保持する試料保持部と、
パルス光放射手段側からのパルス光を試料へ導光すると共に、該照射によって試料から反射又は透過したパルス光を検出手段側へ導光する試料部入出射光学系と、
を備えた時系列変換パルス分光計測装置において、
前記分割手段から前記パルス光放射手段までの入射側光路及び/又は前記分割手段から前記検出手段までの検出側光路に配置された少なくとも一の測光域設定用の光路長変更手段と、
前記分割手段から前記パルス光放射手段までの入射側光路及び/又は前記分割手段から前記検出手段までの検出側光路に配置された少なくとも一の前記時系列信号測定用の光学的遅延手段と、を備えたことを特徴とする時系列変換パルス分光計測装置。
- [2] 前記測定域設定用の光路長変更手段は可動型の反射器であることを特徴とする請求項1に記載の時系列変換パルス分光計測装置。
- [3] 前記測定域設定用の光路長変更手段は可動型又は固定型の反射器であり、
該反射器のいずれかは、該反射器へのパルス光の入射側に該反射器へのパルス光の通過又は阻止を行うゲート手段を備え、前記通過又は阻止の切り換えによって、一又は二以上の前記反射器を経由した光路を付加して光路長を延長すること、及び/又は、一又は二以上の前記反射器をスキップして光路長を短縮することを可能とすることを特徴とする請求項1に記載の時系列変換パルス分光計測装置。
- [4] 少なくとも一の前記ゲート手段の通過又は阻止は、該ゲート手段の並進移動による

光路への挿脱によって行われることを特徴とする請求項3に記載の時系列変換パルス分光計測装置。

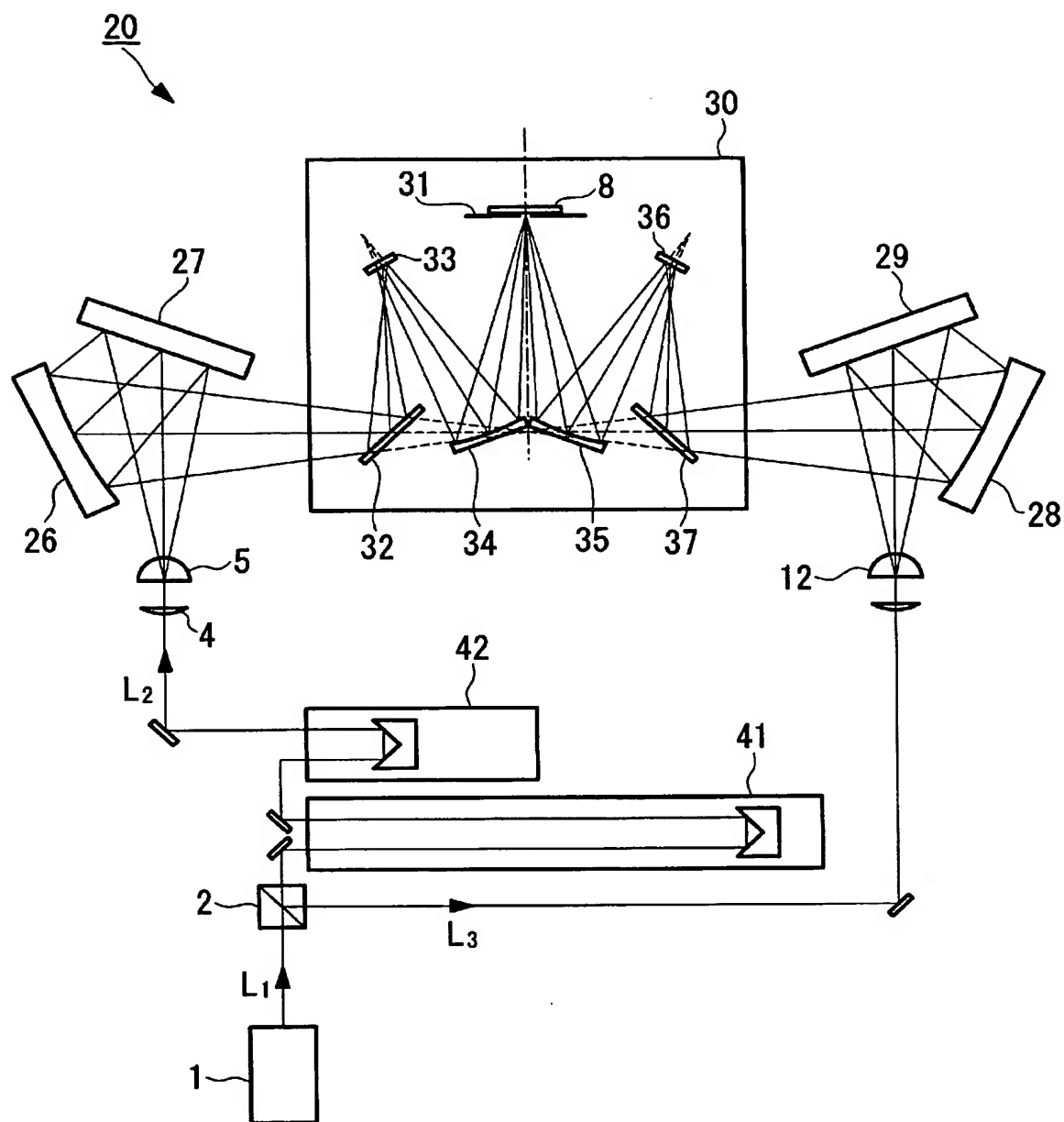
- [5] 少なくとも一の前記ゲート手段の通過又は阻止は、該ゲート手段の回動による光路への挿脱によって行われることを特徴とする請求項3に記載の時系列変換パルス分光計測装置。
- [6] 前記光路長変更手段及び/又は前記光学的遅延手段を自動で走査する駆動装置と、該駆動装置を自動的に制御するコンピュータ制御装置とを備えたことを特徴とする請求項1から5のいずれか一項に記載の時系列変換パルス分光計測装置。
- [7] 前記試料保持部と前記試料部入出射光学系とは前記時系列変換パルス分光計測装置に着脱交換可能な付属光学ユニット内に備えられていることを特徴とする請求項1から6のいずれか一項に記載の時系列変換パルス分光計測装置。
- [8] 前記付属光学ユニットに対して光学的整合を有するように光学設計がなされていることを特徴とする請求項7に記載の時系列変換パルス分光計測装置。
- [9] パルスレーザー光源と、
該パルスレーザー光源からのパルスレーザー光を励起用パルスレーザー光と検出用パルスレーザー光とに分割する分割手段と、
前記励起用パルスレーザーの照射により遠赤外波長域の波長を含むパルス光を放射するパルス光放射手段と、
該パルス光放射手段からのパルス光が照射された試料からの反射又は透過パルス光の電界強度の時系列信号を検出する検出手段と、
試料を保持する試料保持部と、
パルス光放射手段側からのパルス光を試料へ導光すると共に、該照射によって試料から反射又は透過したパルス光を検出手段側へ導光する試料部入出射光学系と、
を備えた時系列変換パルス分光計測装置において、
前記パルス光放射手段から前記試料部入出射光学系にかけて、および/または、前記検出手段から前記試料部入出射光学系にかけて、一又は複数の平面鏡および一又は複数の非球面鏡が、この順番で配置されていることを特徴とする時系列変換パルス分光計測装置。

- [10] パルスレーザー光源と、
該パルスレーザー光源からのパルスレーザー光を励起用パルスレーザー光と検出用パルスレーザー光とに分割する分割手段と、
前記励起用パルスレーザーの照射により遠赤外波長域の波長を含むパルス光を放射するパルス光放射手段と、
該パルス光放射手段からのパルス光が照射された試料からの反射又は透過パルス光の電界強度の時系列信号を検出する検出手段と、
試料を保持する試料保持部と、
パルス光放射手段側からのパルス光を試料へ導光すると共に、該照射によって試料から反射又は透過したパルス光を検出手段側へ導光する試料部入出射光学系と、
を備えた時系列変換パルス分光計測装置において、
前記パルス光放射手段から前記試料部入出射光学系にかけて、および／または、
前記検出手段から前記試料部入出射光学系にかけて、一又は複数の平面鏡および一又は複数の非球面鏡が、この順番で配置されていることを特徴とする請求項1から8のいずれかに記載の時系列変換パルス分光計測装置。

[図1]

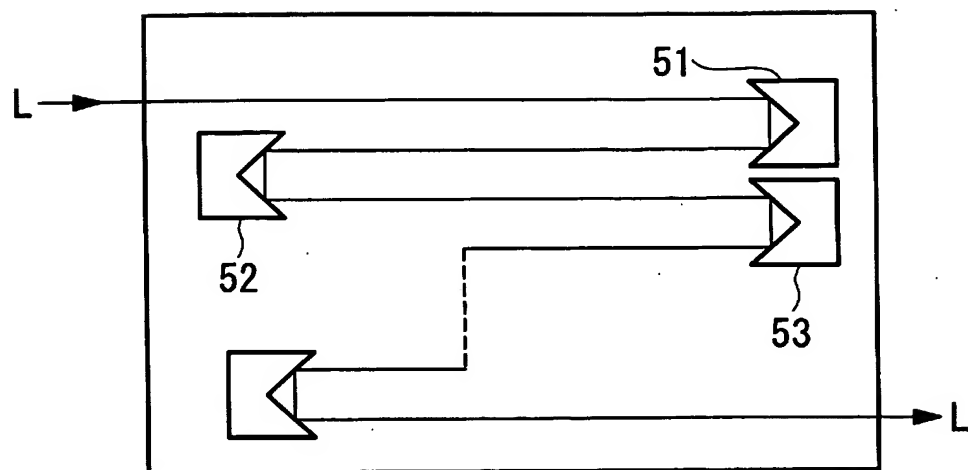


[図2]

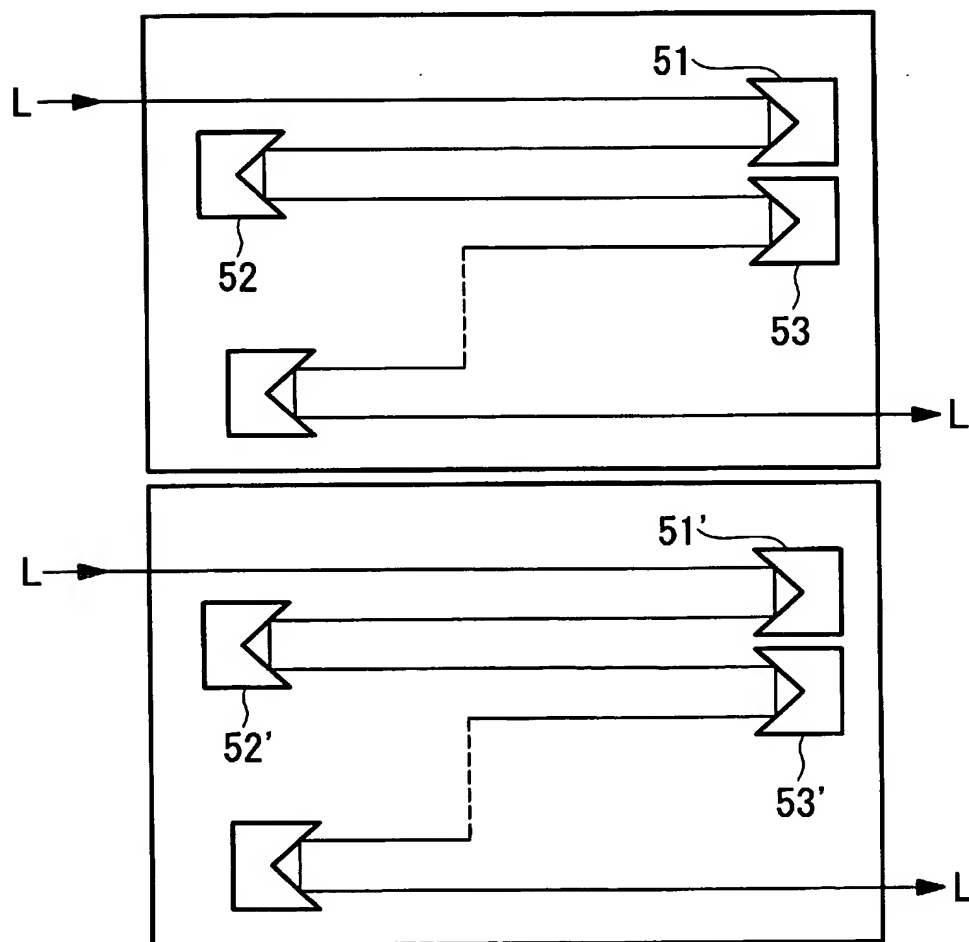


[図3]

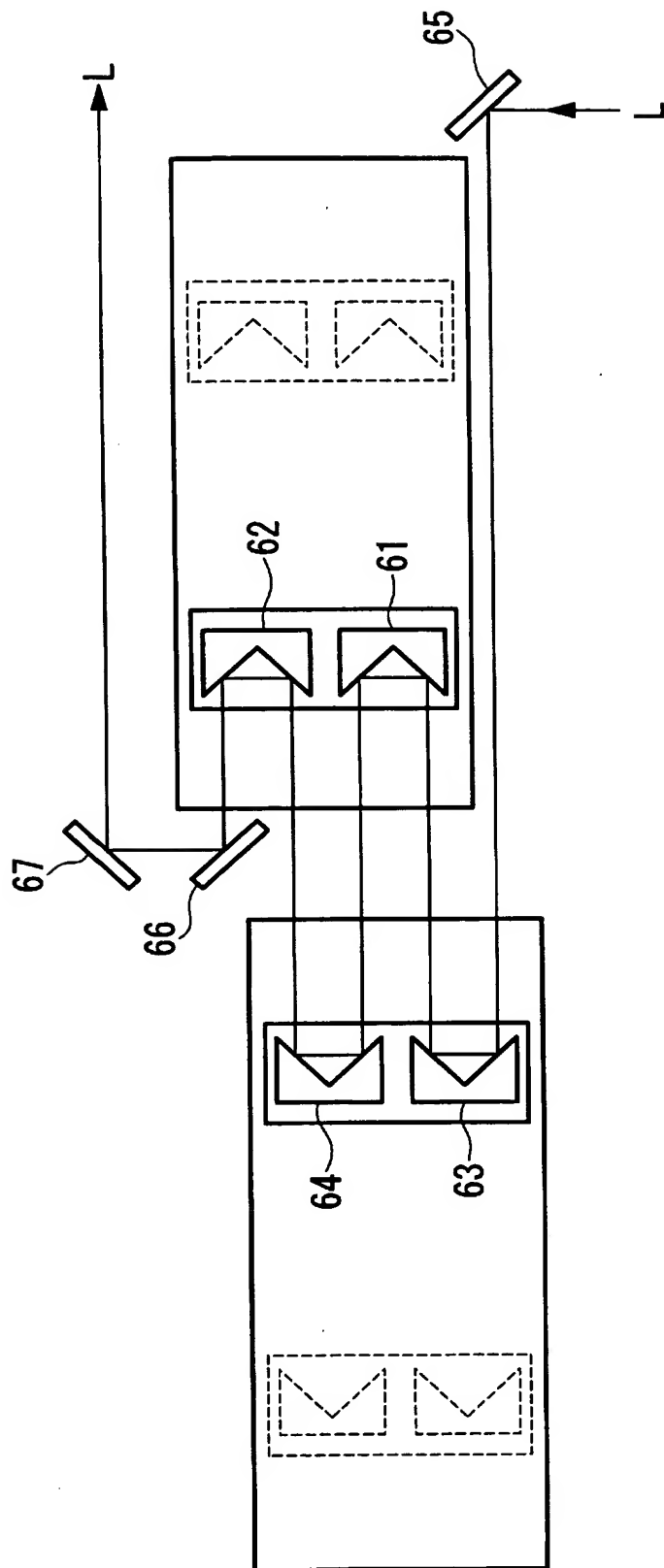
(a)



(b)

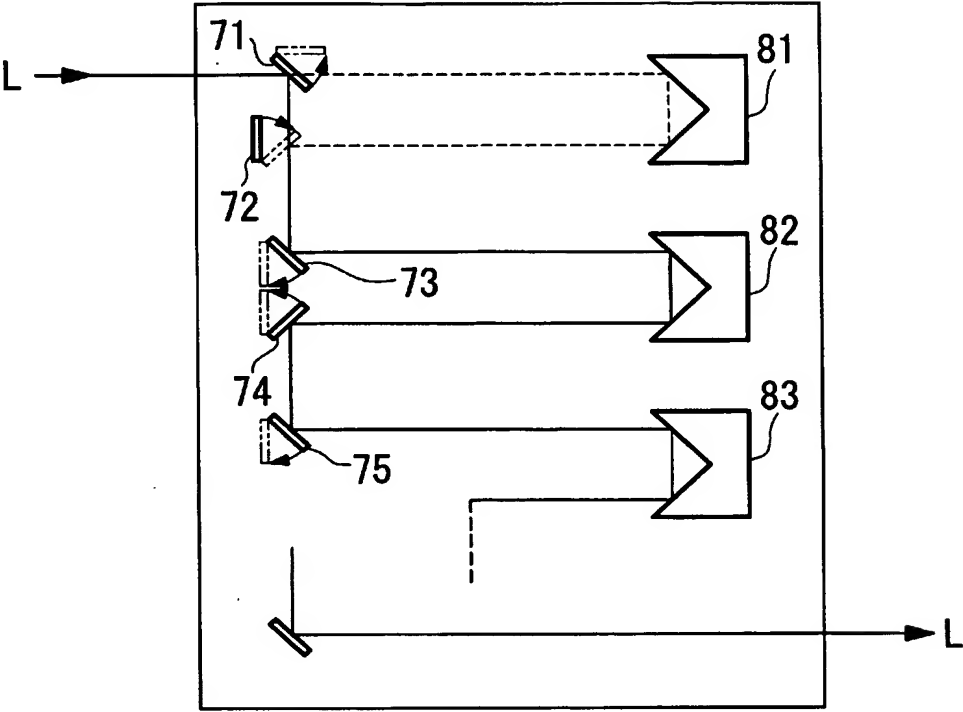


[図4]

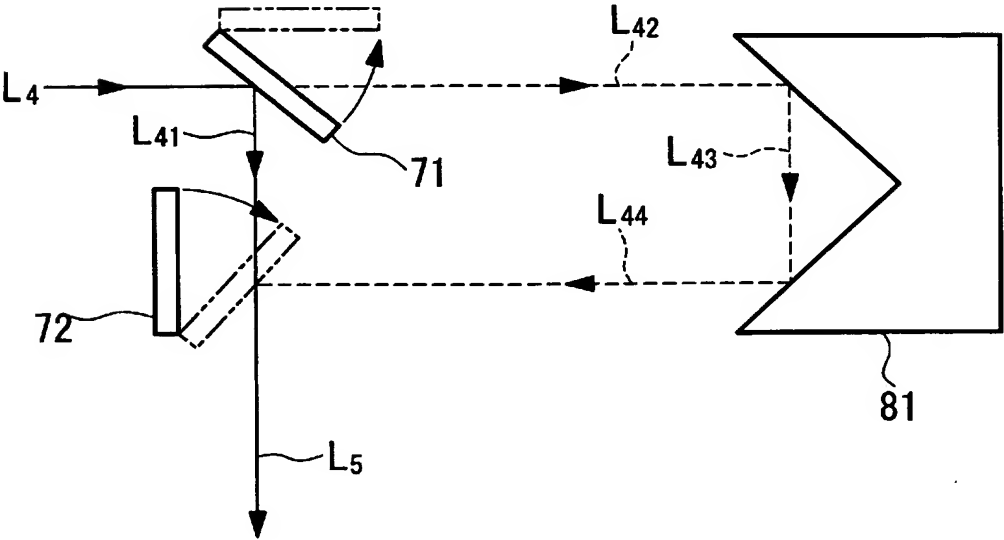


[図5]

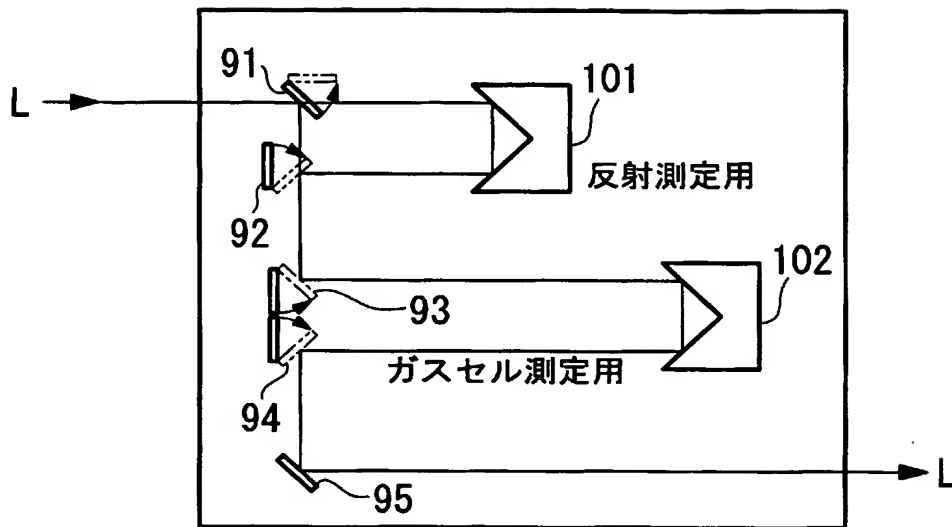
(a)



(b)

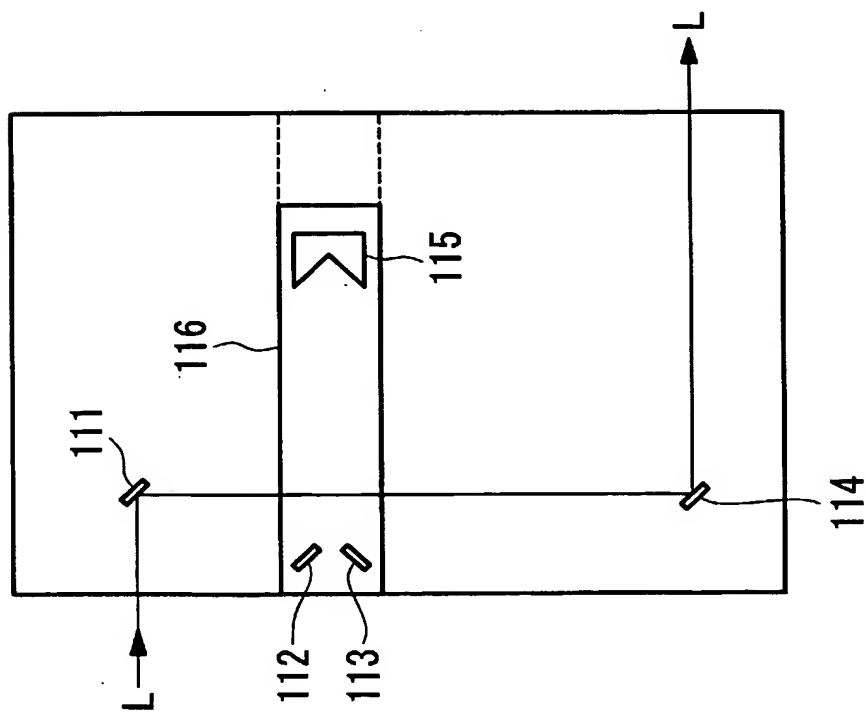


[図6]

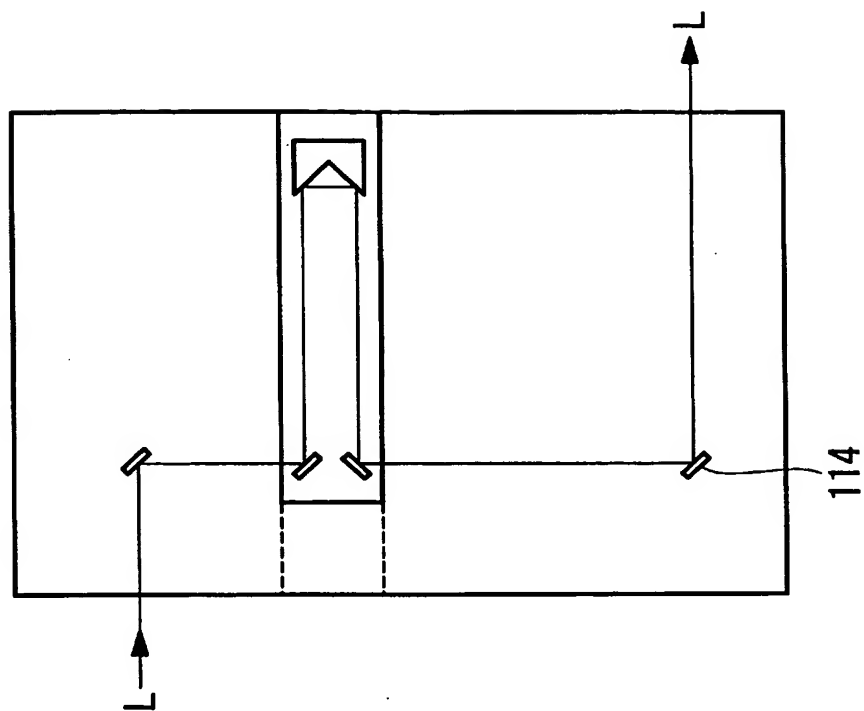


[図7]

(a)



(b)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2004/011926

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ G01N21/35

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ G01N21/00-21/61, G01J3/00-3/52

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
IEEE Xplore, Web of Science, WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2000-275105 A (Nippon Bunko Kabushiki Kaisha), 06 October, 2000 (06.10.00), Par. Nos. [0058] to [0062], [0072], [0084] to [0086]; Figs. 4, 6 (Family: none)	1-2, 6-8 9-10 3-5
Y	JP 11-108845 A (Lucent Technologies Inc.), 23 April, 1999 (23.04.99), Par. Nos. [0007] to [0011]; Fig. 1 & US 6078047 A & EP 864857 A	9-10

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
07 September, 2004 (07.09.04)

Date of mailing of the international search report
21 September, 2004 (21.09.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/011926

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	S. KOJIMA et al., "Terahertz time domain spectroscopy of complex dielectric constants of boson peaks", JOURNAL OF MOLECULAR STRUCTURE, Vols. 651 to 653, 01 June, 2003 (01.06.03), pages 285 to 288, [2. Experimental], Fig. 1	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/011926

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions of claims 1-10 all relate to a so-called THz-TDS. Among them, the inventions of claims 1-8, 10 have a "special technical feature" relating to optical path length modifying means for setting a measurement light range while the invention of claim 9 has a "special technical feature" relating to a flat mirror and an aspherical mirror arranged before and after the sample section incoming/outgoing optical system. There is no technical relationship among those inventions involving one or more of the same or corresponding technical features. Accordingly, the inventions are not so liked as to form a single general inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G01N21/35

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G01N21/00-21/61, G01J3/00-3/52

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

IEEE Xplore, Web of Science, WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2000-275105 A (日本分光株式会社) 2000.10.06	1-2, 6-8
Y	段落【0058】 - 【0062】 , 【0072】 , 【0084】 - 【0086】 , 第4, 6図	9-10
A	(ファミリーなし)	3-5
Y	JP 11-108845 A (ルーセント テクノロジーズ インコーポレイテッド) 1999.04.23 段落【0007】 - 【0011】 , 第1図 & US 6078047 A & EP 864857 A	9-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07.09.2004

国際調査報告の発送日

21.9.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高場 正光

2W

2910

電話番号 03-3581-1101 内線 3290

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	S.Kojima, <i>et al.</i> : "Terahertz time domain spectroscopy of complex dielectric constants of boson peaks" JOURNAL OF MOLECULAR STRUCTURE Volumes 651-653, 2003.06.01, Pages 285-288 [2. Experimental], Figure 1	1

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-10に係る発明は、いずれもいわゆるTHz-TDSに関するものであるが、そのうち、請求の範囲1-8, 10に係る発明の「特別な技術的特徴」は、測光域設定用の光路長変更手段に関するものであり、一方、請求の範囲9に係る発明の「特別な技術的特徴」は試料部入出射光学系前後に配置される平面鏡及び非球面鏡に関するものである。これらの発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係がないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。